

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局



(43) 国際公開日  
2003 年 7 月 17 日 (17.07.2003)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 03/057765 A1

- (51) 国際特許分類: C08J 5/18, C08L 67/00
- (21) 国際出願番号: PCT/JP03/00014
- (22) 国際出願日: 2003 年 1 月 6 日 (06.01.2003)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2002-821 2002 年 1 月 7 日 (07.01.2002) JP  
特願 2002-108199 2002 年 4 月 10 日 (10.04.2002) JP  
特願 2002-339238 2002 年 11 月 22 日 (22.11.2002) JP  
特願 2002-339239 2002 年 11 月 22 日 (22.11.2002) JP  
特願 2002-377516 2002 年 12 月 26 日 (26.12.2002) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 東洋紡績株式会社 (TOYO BOSEKI KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒520-8230 大阪府 大阪市北区 堂島浜二丁目 2 番 8 号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 河原 恵造 (KAWA-HARA, Keizou) [JP/JP]; 〒520-0292 滋賀県 大津市 堅

田二丁目 1 番 1 号 東洋紡績株式会社 総合研究所内 Shiga (JP). 吉田 成人 (YOSHIDA, Shigeto) [JP/JP]; 〒520-0292 滋賀県 大津市 堅田二丁目 1 番 1 号 東洋紡績株式会社 総合研究所内 Shiga (JP). 堤 正幸 (TSUTSUMI, Masayuki) [JP/JP]; 〒520-0292 滋賀県 大津市 堅田二丁目 1 番 1 号 東洋紡績株式会社 総合研究所内 Shiga (JP). 佐倉 大介 (SAKURA, Daisuke) [JP/JP]; 〒520-0292 滋賀県 大津市 堅田二丁目 1 番 1 号 東洋紡績株式会社 総合研究所内 Shiga (JP). 永良 哲庸 (NAGARA, Akinobu) [JP/JP]; 〒520-0292 滋賀県 大津市 堅田二丁目 1 番 1 号 東洋紡績株式会社 総合研究所内 Shiga (JP). 秋友 由子 (AKITOMO, Yoshiko) [JP/JP]; 〒520-0292 滋賀県 大津市 堅田二丁目 1 番 1 号 東洋紡績株式会社 総合研究所内 Shiga (JP). 高橋 則子 (TAKAHASHI, Noriko) [JP/JP]; 〒520-0292 滋賀県 大津市 堅田二丁目 1 番 1 号 東洋紡績株式会社 総合研究所内 Shiga (JP). 小田 尚伸 (ODA, Naonobu) [JP/JP]; 〒484-8508 愛知県 犬山市 大字木津字前畑 344 番地 東洋紡績株式会社 犬山工場内 Aichi (JP). 今井 一元 (IMAI, Kazumoto) [JP/JP]; 〒484-8508 愛知県 犬山市 大字木津字前畑 344 番地 東洋紡績株式会社 犬山工場内 Aichi (JP). 竹内 邦夫 (TAKEUCHI, Kunio) [JP/JP]; 〒484-8508 愛知県 犬山市 大字木津字前畑 344 番地 東洋紡績株式会社 犬山工場内 Aichi (JP). 永野 照 (NAGANO, Hiroshi) [JP/JP]; 〒484-8508 愛知県 犬山市 大字木津字前畑 344 番地 東洋紡績株式会社 犬

[続葉有]

(54) Title: EASY-TO-TEAR STRETCHED ALIPHATIC-POLYESTER FILM

(54) 発明の名称: 易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルム

(57) **Abstract:** An easy-to-tear stretched aliphatic-polyester film, characterized by having an edge tear strength of 22 N or lower in each of the machine direction and transverse direction. The easy-to-tear stretched aliphatic-polyester film is produced by a method in which an aliphatic polyester film is irradiated with actinic rays or a method in which aliphatic polyesters differing in melting point are superposed under specific conditions to form an A/B/A three-layer constitution.

(57) 要約:

本発明の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムは、縦方向及び横方向の端裂抵抗が 22 N 以下であることを特徴としている。本発明の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムは、脂肪族ポリエステル系フィルムに活性線を照射する方法や融点の異なる脂肪族ポリエステルの A/B/A の三層に積層したフィルムを特定条件で製膜する方法により製造される。

500,799

WO 03/057765 A1



山工場内 Aichi (JP). 小林 久人 (KOBAYASHI, Hisato) [JP/JP]; 〒520-0292 滋賀県 大津市 堅田二丁目 1 番 1 号 東洋紡績株式会社 総合研究所内 Shiga (JP). 森 啓治 (MORI, Keiji) [JP/JP]; 〒103-8530 東京都 中央区 日本橋小網町 17 番 9 号 東洋紡績株式会社 東京支社 内 Tokyo (JP). 藤田 裕久 (FUJITA, Yasuhisa) [JP/JP]; 〒520-8230 大阪府 大阪市北区 堂島浜二丁目 2 番 8 号 東洋紡績株式会社 本社内 Osaka (JP).

(81) 指定国 (国内): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (広域): ARIPO 特許 (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア特許 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OAPI 特許 (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

## 明細書

## 易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルム

## 技術分野

本発明は、引き裂き易い生分解性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムに  
5 関する。特に、耐熱性、生分解性、保香性、耐水性、力学特性に優れ、且  
つ包装用フィルムや粘着テープ用フィルムとして有用な易引き裂き性とひ  
ねり固定性の良好な脂肪族ポリエステル系延伸フィルムに関するものである。  
る。

また本発明は、易引き裂き性に優れ、かつ引張り衝撃性が優れていると  
10 という二律背反の両特性を兼ね揃えたセロファンフィルムの特長を有し、さ  
らにセロファンフィルムの欠点である耐湿性、生分解性が改善された脂肪  
族ポリエステル系延伸フィルムに関するものである。

また本発明は、易カット性に優れ、かつ脂肪族系ポリエステル系延伸フ  
ィルムの特長である耐熱性、生分解性、保香性、強韌性等を合わせて有す  
15 る環境対応型の包装用袋に関するものである。

## 背景技術

従来から、易引き裂き性の優れたフィルムとしてセロハンフィルムが知  
られている。セロハンフィルムは、透明性、易引き裂き性、ひねり固定性  
20 等の特性が良好であるため、食品や医薬品の包装材料、粘着テープ用素材  
等に広く用いられている。しかし、一方ではセロハンフィルムは吸湿性が  
高く、フィルムの特性が季節により変動し一定の品質のものを常に供給す  
ることが困難である。また、セロハンフィルムは、その製造工程において  
25 硫酸、二硫化炭素といった毒性の高い物質を多量に使用するため、これら  
の流出時には、重大な環境汚染問題となる恐れがある。

一方、ポリエチレンテレフタレートフィルムを基材とした包装用袋や粘  
着テープは、フィルムの強韌性、耐熱性、耐水性、透明性は優れているが、  
一方で、包装用袋としては開封時に口が引き裂きにくい欠点やひねり固定

性が劣るためにひねり包装用に用いることができないという欠点、粘着テープとしては手やディスペンサーで切りにくい等の欠点があった。

上記欠点を解決する方法として、一軸方向に配向させたポリエステルフィルム（特公昭 55-8551 号公報）やジエチレングリコール成分などを共重合させたフィルム（特公昭 56-50692 号公報）や低分子量のポリエステル樹脂を用いたフィルム（特公昭 55-20514 号公報）などが提案されている。

しかしながら、上記従来技術において、一軸方向に配向させる方法は、配向方向へは直線的に容易に切れるが、配向方向以外には切れにくい。また、ジエチレングリコール成分などを多量に共重合させる方法は、共重合によりポリエチレンテレフタレート本来の強靱性や耐熱性が失われるという欠点があった。又、低分子量のポリエステル樹脂を用いる方法では、延伸工程での破断のトラブルが発生しやすくなり、実用的ではなかった。

これに対し特開平 5-104618 号公報では、ポリエステルフィルムを融点の異なるポリエステル樹脂からなる多層構成とし、製造工程において熱処理温度を制御することにより、耐熱性、保香性、耐水性、強靱性といった特性を維持しつつ、引裂き性とひねり固定性が良好なフィルムを得ている。又、延伸工程における破断トラブルも軽減させている。しかし、このフィルムでも引裂き性とひねり固定性は必ずしも十分ではない。又、生分解性も無いので、環境への負荷は考慮されていないという問題があった。

また、手切れ性、すなわち引き裂き性に優れており、さらに前記したセロファンフィルムの有している耐湿性等の欠点が改善されたシンジオタクチック構造を有したポリスチレン系重合体よりなるフィルムが注目され、例えば特開平 5-33809 号公報、特開 2000-25835 号公報および特開 2002-240209 号公報等において、該シンジオタクチック構造を有したポリスチレン系重合体よりなるフィルムを用いた各種の包装袋が提案されている。

確かに前記した公知の方法で得られたフィルムは、セロファンフィルム

の有する特徴の一つである易引き裂き性は改善されており実用に給せられるレベルのものもあるが、もう一つの特徴である引張り衝撃強度は改善されておらず、耐衝撃性を要求される分野への展開はできなかった。

一方、近年、廃棄物問題の深刻化から、より環境負荷の小さな包装用材料、粘着テープ材料の普及が望まれている。すなわち、ポリエチレンテレフタレートをはじめとするポリエステル等をフィルム、シートの形態で埋め立て廃棄した場合、これらが腐食、分解しにくいことから、自然環境下に残存し、環境汚染の一因となる。また、焼却処分においても、素材自体、あるいは積層材、添加剤の発熱量が高いためによる焼却炉の損傷や有害ガスの発生がもたらされ望ましくない。

このような問題に対処するため、自然界に存在する微生物に分解される生分解性素材の開発が進められている。中でも乳酸系ポリエステルフィルムは耐熱性、保香性、透明性、強靱性、成形加工性に優れ、包装用素材、粘着テープ素材、容器、電子部品関連材料など広範囲にわたる用途展開が実現されつつある。しかし、該フィルムは易引裂き性が良くないため、該フィルムを包装用袋として用いた場合は、易カット性に劣るという課題があった。

#### 図面の簡単な説明

##### 図 1

引き裂きエネルギー測定用試料の形状を示す模式図である。

##### 図 2

引き裂きエネルギー測定で得られた S - S 曲線における最大強度および最大強度を示した伸びを示す模式図である。

#### 発明の開示

本発明の目的は、セロハンフィルムの特長である易引き裂き性、ひねり固定性、透明性を有し、且つ脂肪族ポリエステル系延伸フィルムの特長である耐熱性、生分解性、保香性、強靱性等を合わせて有する環境対応型の

フィルムを提供することを目的としたものである。

本発明のもう 1 つの目的は、易引き裂き性に優れ、かつ引張り衝撃性が優れているという二律背反の両特性を兼ね備えたセロファンフィルムの特長を有し、さらにセロファンフィルムの欠点である耐湿性が改善された環境  
5 対応型の生分解性フィルムを提供することである。

更に本発明のもう 1 つの目的は、易カット性を有し、かつ生分解性、耐熱性、保香性、強靱性などを合わせて有する環境対応型の包装用袋を提供することである。

本発明者らは、上記目的達成のために鋭意検討した結果、例えば脂肪族  
10 ポリエステル系延伸フィルムに活性線を照射することによって、フィルムの縦方向及び横方向の端裂抵抗が 22 N 以下とすることで易引き裂き性のフィルムが得られることを見出した。

またさらに、例えば柔軟性ポリエステル樹脂を配合した脂肪族ポリエステル系延伸フィルムに活性線を照射することによって、特定の引き裂きエ  
15 ネルギーと引張り衝撃強度を持ったフィルムにすることで易引き裂き性に優れ、かつ引張り衝撃性が優れているという二律背反の両特性を兼ね備えたセロファンフィルムと同じ特長を有するフィルムが得られることを見出した。

また、前記の易引き裂き性フィルムの製造方法として、特定の製膜条件  
20 で融点の異なる脂肪族ポリエステルを A/B/A の三層に積層する方法も見出した。

すなわち、本発明は以下の①～⑨のとおりである。

- ①縦方向及び横方向の端裂抵抗が 22 N 以下であることを特徴とする易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルム、
- 25 ②波長 205 nm における分子吸光係数が 1500 以上であることを特徴とする易引き裂き性脂肪族ポリエステルフィルム、
- ③引き裂きエネルギーが 0.2～5 gf・mm/μm、かつ引張り衝撃強度が 0.5 J/mm<sup>2</sup> 以上であることを特徴とする易引き裂き性脂肪族ポ

リエステル系延伸フィルム、

④脂肪族ポリエステル系延伸フィルムに活性線を照射することにより製造することを特徴とする①～③いずれか1項に記載の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルム、

- 5 ⑤脂肪族ポリエステル系延伸フィルムの主成分が乳酸系ポリエステル樹脂であることを特徴とする①～④いずれか1項に記載の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルム、

⑥脂肪族ポリエステル系フィルムに活性線を照射したフィルムを用いて製袋してなることを特徴とする易カット性包装用袋、

- 10 ⑦脂肪族ポリエステル系フィルムを用いて製袋した包装用袋に活性線を照射してなることを特徴とする易カット性包装用袋、

⑧脂肪族ポリエステル系フィルムの主成分が乳酸系ポリエステル樹脂であることを特徴とする⑥及び⑦いずれか1項に記載の易カット性包装用袋、

- ⑨乳酸系ポリエステル樹脂層(A)の少なくとも片面に、(A)の融点 $T_{m_A}$ に対し $T_{m_B} \geq T_{m_A} + 10^\circ\text{C}$ なる融点 $T_{m_B}$ を有する樹脂(B)を、フィルム全体の厚さに対して(B)が5～60%の厚みになるように積層した未延伸積層フィルムを、少なくとも一軸方向に延伸した後、 $T_{m_A} - 10^\circ\text{C} \leq T_s < T_{m_B} + 10^\circ\text{C}$ を満たす温度 $T_s$ にて熱処理を行うことを特徴とする乳酸系ポリエステルフィルムの製造方法である。
- 15

- 20 以下、本発明を更に詳細に説明する。

本発明①～⑨の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムの主成分となる原料樹脂である脂肪族ポリエステル樹脂としては、例えば、ポリブチレンサクシネート、ポリヒドロキシブチレート、ポリ乳酸等の脂肪族ジカルボン酸と脂肪族ジオール又は脂肪族のヒドロキシカルボン酸や脂肪族のラクチドから得られる脂肪族ポリエステル樹脂が挙げられる。これらの脂肪族ポリエステル樹脂は、共重合することも可能である。また、これらの樹脂に相溶性の樹脂又は非相溶性の樹脂を混合することも可能である。特に乳酸系ポリエステル樹脂を主成分とするフィルムが、本発明の特性を

25

満足するフィルムが得られ易く、また、耐熱性、保香性、透明性、強靱性、成形加工性に優れているので好ましい。

前記の乳酸系ポリエステル樹脂としては、L-乳酸重合体、D-乳酸重合体、またはそのブレンド体、その共重合体、更にそれらとポリヒドロキシブチレート等との共重合体、その他の樹脂との混合体などを挙げることができる。

前記の脂肪族ポリエステル樹脂の分子量は、例えば、乳酸系ポリエステル樹脂の場合は、重量平均分子量で、1万以上50万以下が好ましく、特に好ましくは3万以上30万以下である。重量平均分子量が1万未満の場合、安定した押出しやキャスティングを行うことが困難となりやすく、逆に50万を越えると、押出し機内での圧力上昇のために溶融押出しが困難となりやすい。

尚、本発明の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムには、本発明の効果を阻害しない範囲で、公知の各種添加剤、例えば、滑剤、顔料、熱安定化剤、酸化防止剤、帯電防止剤、耐衝撃性改良剤などが添加されていてもよい。

本発明①の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムは、縦方向及び横方向の端裂抵抗が22N以下である必要がある。更に好ましくは、20N以下であり、特に好ましくは18N以下である。該端裂抵抗が22Nを越えた場合は、易引き裂き性やひねり固定性が悪化するので好ましくない。一方、端裂抵抗が小さすぎるとフィルムを加工する工程等で破断が発生する場合があるので、2N以上が好ましい。

本発明②の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムは、波長205nmにおける分子吸光係数が1500以上である。該フィルムは、例えば、脂肪族ポリエステルフィルムに紫外線を照射することにより、光化学反応によって脂肪族ポリエステルの化学変性を行なう方法が挙げられる。通常の製膜で得た脂肪族ポリエステルフィルムは、波長205nmにおける分子吸光係数が1500未満であるが、化学変性によって、該分子



吸光係数を1500以上に増加させることができ、フィルムに易引き裂き性とひねり固定性が発現する。

本発明③の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムは引き裂きエネルギーが0.2～5 gf・mm/μmで、かつ引張り衝撃強度が0.

- 5 5 j/mm<sup>2</sup> 以上である。好ましくは、引き裂きエネルギーが0.2～4 gf・mm/μmであり、引張り衝撃強度は0.55 j/mm<sup>2</sup>以上である。引き裂きエネルギーはフィルムの引き裂き性の尺度であり、引張り衝撃強度はフィルムに衝撃を加えた時のフィルムの強度である。引き裂きエネルギーが0.2 gf・mm/μm未満ではエネルギーが低すぎ、弱い力で
- 10 フィルムが裂けるので好ましくない。逆に、5 gf・mm/μmを越えた場合は引き裂きエネルギーが高すぎ引き裂き性が低下し、例えば手切れ性等が悪化するので好ましくない。一方、引張り衝撃強度が0.55 j/mm<sup>2</sup> 未満では引張り衝撃強度が不足し弱い衝撃によりフィルムが破れるので好ましくない。従って、前記した特性を満たすことで、セロファン
- 15 フィルムが有している手切れ性が良く、かつ耐衝撃性に優れるという二律背反の特性が付与でき、包装体用等の分野において好適に使用される。

本発明①～③の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムの1つの製造方法は、例えば④に記載のごとく、脂肪族ポリエステル系フィルムに活性線を照射することにより製造される。

- 20 本発明①～③の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムのもう1つの製造方法は、活性線を照射することは必須では無く、例えば⑨に記載のごとく、特定の製膜条件で融点の異なる脂肪族ポリエステルをA/B/Aの三層に積層することにより製造される。

- 25 活性線を照射して本発明①～③のフィルムを製造する場合について、さらに説明する。

この場合、活性線照射前の脂肪族ポリエステル系延伸フィルムの製膜方法は限定なく任意である。例えば、まず、脂肪族ポリエステル樹脂を押出機等で融点以上の温度で溶融し、ダイス出口から押し出して未延伸フィル

ムを得る。該未延伸フィルムを、更に一軸延伸または二軸延伸を行い、必要に応じて熱固定処理をすることによって得られる。特に二軸延伸フィルムは厚み斑が少なく、また引き裂き方向性の均一なフィルムが得られ易い点で好ましい。

- 5 活性線を照射前のポリエステル系延伸フィルムは、単層フィルムでも積層フィルムでもよく、積層フィルムである場合は、例えば、複数の押出機で融点以上の温度で別々に熔融し、ダイス出口から押し出して成形した未延伸フィルム同士を加温状態でラミネートする方法、又、一方の未延伸フィルム  
10 の表面に、他方の熔融フィルムを熔融ラミネートする方法、共押出し法により、フィードブロック内やダイス内で樹脂を熔融状態で積層させダイス出口より押し出して冷却固化する方法等で未延伸フィルムを得ることができる。ダイスはフラットダイ、環状ダイのいずれでも構わない。

- 得られた単層または複層の未延伸のフィルムは、脂肪族ポリエステル樹脂の融点以下の温度で一軸延伸または二軸延伸を行う。例えば、乳酸系ポリ  
15 エステル樹脂の場合は、40℃～170℃で延伸する。延伸倍率は、一軸延伸の場合は少なくとも1.5倍以上、好ましくは3～5倍であり、二軸延伸の場合は面積倍率で10倍以上、好ましくは16倍以上である。延伸倍率が低いと、延伸フィルムの引裂き性や厚みの斑が悪化する。延伸倍率が高すぎると、引裂きの方向性が強くなる点、生産中の破断が多くなり  
20 生産性が悪化する点で問題となる。又、二軸延伸する場合は、逐次延伸法、同時延伸法のいずれでも構わない。延伸方法もロール延伸法、テンター延伸法、インフレーション法いずれでも構わない。

- 本発明の脂肪族ポリエステル系延伸フィルムは、延伸した後、更に熱処理を行なうことで易引き裂き性を付与することが好ましい。熱処理温度は、  
25 例えば、脂肪族ポリエステル樹脂の融点より0～50℃低い温度で行う。例えば、乳酸系ポリエステル樹脂の場合は130℃～170℃で熱処理するのが好適である。熱処理温度が低すぎると分子配向を崩すことができず、良好な引き裂き性のフィルムを得ることができない場合がある。熱処理温

度が高すぎると、フィルムに穴空きが生じ、破断が多発して製膜が困難となる。また、熱固定処理の後、熱弛緩処理を行なうと熱寸法安定性が改善されるので好ましい。

適切な延伸条件や熱処理条件、積層厚み構成の選択によって、易引き裂き性やひねり固定性を改善できる。該方法を取り入れることも何ら制限を受けない。

本発明③のフィルムは、例えば、前記した原料の脂肪族ポリエステル系樹脂に、ポリエステル系のエラストマーや柔軟性脂肪族ポリエステル重合体等の柔軟性ポリエステル系重合体を脂肪族ポリエステル系樹脂 100 重量部に対して 3 ～ 30 重量部配合して前記同様に得た脂肪族ポリエステルフィルムを活性線処理することで得られる。また、フィルムの製造における延伸倍率を低目に設定することが好ましい。なお、前記した改質用の柔軟性ポリエステル系重合体としては、脂肪族系ポリエステル重合体を用いるのが、生物分解性の点より好ましい実施態様である。

易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムを得るために、前記の方法により得た脂肪族ポリエステル系フィルムに活性線を照射する。該活性線の種類は脂肪族ポリエステルの構造を化学変性可能なエネルギーを有したものであれば特に限定されない。例えば、紫外線、電子線、 $\gamma$ 線、X線等が例示される。紫外線源としては、脂肪族ポリエステル系延伸フィルムが有する吸収波長領域に発光波長を有するものが好ましく、例えば、低圧水銀灯、高圧水銀灯、ケミカルランプ、キセノンランプ、ジルコニウムランプ、カーボンアーク灯、殺菌灯等、人工の光源を挙げる事ができるが、これらに限定されない。尚、太陽光等の自然光はその照度が小さいため、実際的ではない。

前記した活性線による照射処理の方法としては、フィルム製膜時のインライン処理でも、フィルム製膜後のバッチ処理でもよく、更には包装袋などに加工した後でも構わなく、その方法は限定されない。

また、本発明①～③の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルム

は、製膜工程において公知のコーティング方法によって接着性や印刷性等を改良するために表面加工してもよい。また、脂肪族ポリエステルフィルムの表面の濡れ性、接着性を向上させるためにコロナ処理、プラズマ処理、火炎処理等の表面加工を施しても構わない。

- 5      また、本発明①～③の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムは、包装用素材として、ドライラミネート、押出しラミネート等の公知の方法を用いてヒートシール性を有する樹脂層を積層させ、ヒートシール性を付与することができる。この場合、生分解性の観点からは、各種生分解性樹脂層を積層させることが好ましい。

- 10      本発明①～③のフィルムは、易カット性包装用袋として好適に使用できる。

本発明⑥および⑦は易カット性包装用袋に関するものである。本発明⑥は、脂肪族ポリエステル系フィルムに活性線を照射したフィルムを用いて製袋してなることを特徴とする易カット性包装用袋であり、本発明⑦は、

- 15      脂肪族ポリエステル系フィルムを用いて製袋した包装用袋に活性線を照射してなることを特徴とする易カット性包装用袋である。

- 本発明⑥および⑦の易カット性包装用袋のシール方式は限定なく任意であるが、ヒートシール法が好ましい方法として例示される。該ヒートシール法で実施する場合は、前記した脂肪族ポリエステル系フィルムとヒート
- 20      シール性を有する樹脂層を積層させ、ヒートシール性を付与する方法が好ましい実施態様である。該積層方法も限定はないが、ドライラミネート、押出しラミネート等の公知の方法を用いるのが好適である。該方法におけるヒートシール性を有する樹脂層の種類も限定はないが、分解性樹脂よりなることが好ましく、特に生分解性の観点からは、各種生分解性樹脂層を
- 25      積層させることが最も好ましい。すなわち、前記した脂肪族ポリエステル系フィルムより融点あるいは軟化点が低い樹脂よりなるフィルムを用いるのが好適である。特に未延伸フィルムを用いるのが好適である。

製袋方法も限定なく任意であり、例えば三方シール製袋機やセンターシ

ール製袋機で製袋した包装用袋が挙げられる。また、自動充填機を用いて、充填と同時に製袋した包装用袋であってもかまわない。

本発明⑥および⑦により得られた包装用袋は、易カット性が付与されているので易カット性付与のための補助手段を必ずしも設ける必要はないが、市場要求によってはノッチを入れたり、あるいは搾孔等を行い手切れ性を向上させる補助手段を設けることも何ら制限を受けない。

本発明⑦においては、易カット性を付与する活性線による処理は製袋した包装用袋にて行われるので、本処理までの工程である製膜工程や製袋工程では、脂肪族ポリエステル系フィルムは易カット性付与前の強靱な状態で通過させることができるために、これらの工程での操作性を低下させることなく実施できるという特長を有している。

次に、活性線を照射することなく本発明①～③のフィルムを製造する場合、すなわち、本発明⑨の融点の異なる脂肪族ポリエステルをA/B/Aの三層に積層したフィルムを特定の製膜条件で製造する方法について説明する。

本発明⑨の乳酸系ポリエステル樹脂層(A)および(B)には前記の乳酸系ポリエステルを用いることができる。ここで乳酸系ポリエステル樹脂層(A)に用いられるポリエステルは、乳酸系ポリエステル樹脂層(B)に用いられるポリエステルの融点よりも10℃以上、好ましくは20℃以上低い融点を有するポリエステルである。乳酸系ポリエステル樹脂層(A)及び(B)の融点を制御する方法としては、たとえば乳酸重合体中のD-乳酸比率を変える方法、ヒドロキシカルボン酸成分の比率を変える方法などが挙げられる。

乳酸系ポリエステル樹脂層(A)及び(B)のポリエステルの重量平均分子量は、いずれも、5万以上50万以下が好ましく、特に好ましくは8万以上30万以下である。重量平均分子量が5万未満の場合、原料を溶融押出ししてキャストを行う際に製膜が不安定となりやすく、逆に50万を越えると、押出し機内での圧力上昇のために溶融押出しが困難となりやすい。

本発明の乳酸系ポリエステル樹脂層(A)及び(B)のポリエステルには、本

発明の効果を阻害しない範囲で、公知の各種添加剤、例えば滑剤、顔料、熱安定化剤、酸化防止剤、帯電防止剤、耐衝撃性改良剤等が添加されていてもよい。

- 5 乳酸系ポリエステル樹脂層 (B) の厚みは全厚みの 5 % 以上、60 % 以下、好ましくは 15 % ~ 50 % の厚みが好ましい。乳酸系ポリエステル樹脂層 (B) の厚みが全厚みの 5 % 未満の場合は、得られるフィルムの強度が不十分なものとなり、実用上支障が出る。また乳酸系ポリエステル樹脂層 (B) の厚みが全厚みの 60 % を越えると十分な引き裂き性とひねり性が得られず好ましくない。また乳酸系ポリエステル樹脂層 (A) と乳酸系ポリエステル樹脂層 (B) の構成は、3 層 (B/A/B、A/B/A) または 2 層 (B/A) の構成のい
- 10 ずれでも構わない。さらに、延伸フィルムの厚みは、特に限定されるものではないが、包装用袋や粘着テープなどの用途においては、 $12\text{ }\mu\text{m}$  ~  $30\text{ }\mu\text{m}$  が好適な厚みである。

- 本発明⑨における未延伸積層フィルムの製造方法は、下記のいずれであっても構わない。 (1) 複数の押出機等の中で融点以上の温度で別々に溶融し、ダイス出口から押し出して成形した未延伸フィルム同士を加温状態でラミネートする方法、 (2) 一方の未延伸フィルムの表面に、他方の溶融フィルムを溶融ラミネートする方法、 (3) 共押し出し法により、フィードブロック内またはダイス内で溶融状態で積層させダイス出口より押し出して
- 20 冷却固化する方法がある。

- 押出し温度は、高融点側のポリエステル (B) の融点  $Tm_B$  に対し  $Tm_B$  ~  $(Tm_B + 70^\circ\text{C})$  の範囲が好ましく、特に好ましくは  $(Tm_B + 20^\circ\text{C})$  ~  $(Tm_B + 50^\circ\text{C})$  の範囲である。押出し温度が  $Tm_B$  未満であると、押出し機内での圧力上昇により押出しが困難となりやすい。一方、 $(Tm_B + 70^\circ\text{C})$  を越えると、乳酸系ポリエステル樹脂の熱分解が進行するため好ましくない。本発明で用いる押出機のダイスは、環状または線状のスリットを有するものどちらでもよい。
- 25

このようにして得られた未延伸積層フィルムは、乳酸系ポリエステル樹

脂 (A) 及び乳酸系ポリエステル樹脂 (B) のガラス転移点のうち高い方の温度以上、ポリエステル樹脂 (A) の融点  $T_{m_A}$  以下の温度で一軸延伸または二軸延伸を行う。延伸倍率は、一軸延伸の場合は少なくとも 1.5 倍以上、好ましくは 3 倍～7 倍であり、二軸延伸の場合は各方向それぞれ 1.5 倍～10 倍、面積倍率で 10 倍以上、好ましくは 16 倍以上である。また、二軸延伸の場合は、逐次二軸延伸方式、同時二軸延伸方式のいずれでも構わない。

本発明の延伸装置としては、例えば、インフレーション製膜機、ロール延伸機、テンター延伸機（横方向延伸タイプ、パンタグラフ式同時二軸延伸タイプ、リニアモーター駆動式同時二軸延伸タイプ）などが挙げられる。

本発明においては、延伸したフィルムを  $T_{m_A} - 10^{\circ}\text{C} \leq T_s < T_{m_B} + 10^{\circ}\text{C}$  を満たす温度  $T_s$  で、より好ましくは  $T_{m_A} \leq T_s < T_{m_B}$  を満たす温度で 2 秒～30 秒間、より好ましくは 5 秒～15 秒間、熱処理を行うことが重要である。熱処理は固定幅で行うことができるが、弛緩しながら、あるいは張力を与えながら熱処理を行うこともできる。熱処理の温度が、 $T_s < T_{m_A} - 10^{\circ}\text{C}$  である場合、乳酸系ポリエステル樹脂層 (A) の分子配向を崩すことができず良好な引き裂き性、ひねり固定性を得ることはできない。また、 $T_s > T_{m_B} + 10^{\circ}\text{C}$  である場合は、フィルムに穴空きが生ずるか、もしくはフィルム自体溶融してしまい製膜が困難となる。すなわち、適切な温度による熱処理操作と、構成厚みの制御により、引き裂き性、ひねり性を与える分子配向の崩壊した層と、乳酸系ポリエステル延伸フィルムが本来持つ特性である耐熱性、強靱性を与える分子配向を維持した層とをバランスさせることができ、相反する物性を両立させることが可能となるのである。

すなわち本発明⑨では、融点の異なる乳酸系ポリエステル層 (A) 及び (B) からなる未延伸積層フィルムを少なくとも 1 方向に延伸した後、低融点を有するポリエステル (A) の融点  $T_{m_A}$  より  $10^{\circ}\text{C}$  低い温度以上で、かつ高融点を有するポリエステル (B) の融点  $T_{m_B}$  より  $10^{\circ}\text{C}$  高い温度未満で熱処

理を実施することにより、各層に以下の特性を付与できる。

ポリエステル (A) 層は延伸工程で配向を崩し脆化させ、引き裂き性とひねり固定性を有する層とする。

ポリエステル (B) 層は配向を維持したまま乳酸系ポリエステルフィルム

5 本来の耐熱性等を有する層とする。

すなわち、2種の異なる特性を有する積層フィルムにすることにより、乳酸系ポリエステルフィルム本来の優れた特性を有しつつ良好な易引き裂き性と易ひねり固定性を具備した乳酸系ポリエステルフィルムが得ることができる。

10 また、本発明⑨においても、製造工程において公知のコーティング手法によって接着性、印刷性改良のための表面加工がなされてもよい。また、表面エネルギーを向上させる目的で、製造工程あるいは製造後においてコロナ処理、プラズマ処理、火炎処理等の表面加工を施しても構わない。

15 発明を実施するための最良の形態

#### 実施例

以下、本発明を実施例により具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例によって限定されるものではない。実施例中で示される特性は、以下の方法で測定・評価したものである。

20 (1) 融点

マックサイエンス社製 DSC 3100S を用い、試料 (10mg) をパンに入れ、220℃で10分間熔融後、急冷した後、室温から220℃まで10℃/分の昇温速度で融解による吸熱ピークを測定し、ピーク温度を融点とした。

25 (2) 重量平均分子量

標準物質としてポリスチレン (東ソー製) 溶液を調製し、GPC 校正曲線を作成し、GPC (昭和電工製 Shodex-System-21) を用い、カラムはGMH×1本・GMH×1本・G2000H×1本 (東ソ



一製)を直列接続して使用し、展開液溶媒はクロロホルム、カラム温度は40℃とし、RI検知で測定した。データはシステムインスルメント製SIC-480でデータ処理し、重量平均分子量を算出した。

### (3) 分子吸光係数

- 5 分子吸光係数は、理化学辞典(岩波書店出版第3版増補版1350頁モル吸光係数)に記載のように、物質固有の係数である。本発明の分子吸光係数は、下記の方法でキャストした約5μm厚みのフィルムの紫外線吸収スペクトルを、日立製作所製自記分光光度計U-3500型を用いて測定し、波長205nmにおける吸光度Aからランベルトーベールの式で求めた。(測定条件:スキャンスピード;60mm/min、サンプリング間隔;0.1nm)

$$\text{分子吸光係数 } \varepsilon = A / b \cdot c$$

A:吸光度(-)、b:フィルム厚さ(cm)とした、c:モル濃度は1とした。

- 15 測定用フィルムのキャスト法:試料を10%濃度でクロロホルムに溶解した溶液を、フッ素樹脂処理したアルミ箔をガラス板上に貼り付けた基板のフッ素樹脂処理面に滴下し、50μmのギャップのスキージを用いて塗工し、室温で10分間乾燥した。該乾燥したフィルムを剥離し、50℃で2時間真空乾燥し測定用フィルムを得た。

### 20 (4) 端裂抵抗

JIS C2318-1975に準じて測定した。値が小さいほど引裂き易い。

### (5) 易引き裂き性

- 25 官能評価を行った。幅15mmのテープ状サンプルを縦方向、横方向について切り出し、それぞれの方向のサンプルを手で切断した時に、容易に手で引き裂けるものを◎、多少劣るが容易に引裂けるものを○、容易には手で引裂けないものを△、手で引裂けないものを×とした。

### (6) ひねり固定性

官能評価を行った。幅 30 mm のテープ状サンプルを手でひねった時、ひねった状態で元に戻らないものを○、ひねった状態を維持できないものを×とした。

(7) 引き裂きエネルギー

- 5      フィルムの長手方向とサンプルの長軸方向が一致するように 100 mm × 50 mm サイズの試料を切り出した。該試料の短軸側の中心部に端部より長軸方向に平行に 50 mm の長さのノッチを入れ、このノッチの終点にノッチを中心として直径 4 mm の穴をパンチで開けた。該試料の形状を図 1 に示す。該試料を用いて、JIS-K7128 のトラウザー法に準じ引き裂き試験を行った。得られた S-S 曲線より、最大強度 (gf) および最大強度を示した伸び (mm) を求め、両者の積をフィルム厚み (μm) で除した値を引き裂きエネルギーとした。該測定により得られる S-S 曲線の模式図を図 2 に示す。測定は 7 回行い、最大値と最小値を除外した 5 個の測定値の平均値で表示した。

- 15      引き裂き試験は以下の条件で行った。

測定装置：島津製作所社製オートグラフ AG5000A

引張り速度：200 mm/分

チャート速度：200 mm/分

(8) 引張り衝撃強度

- 20      フィルムの縦方向に 100 mm、横方向に 10 mm の大きさになるように切り出して測定用サンプルを作製した。東洋精機製作所製 UNIVERSAL IMPACT TESTER を用い、次の方法により測定した。測定サンプルの一方をクロスヘッド、他方をハンマーに取り付け、空振りした際のフルスケールを 10 kgf とし、持ち上げ角度 135 (度) からアームを振り落とし、指針が停止した位置の角度を読み取った。この角度と下記の式より、引張り衝撃強度 (K) を算出した。各サンプルにつき 8 回測定し、最低値と最高値を削除し残った 6 回の測定値の平均値を用いた。

$$K = E \times 9.807 \times 10^{-2} / (T \times W)$$

K ; 引張り衝撃強度 ( $J/mm^2$ )

$E = 0.7071 \times WR + WR \cos \beta$

T ; サンプル厚み (mm)

W ; サンプル幅 (mm)

5 E ; 仕事量 ( $kgf \times cm$ )

WR ; 5.8579 ( $kgf \times cm$ )

$\beta$  ; 測定角度 (度)

#### (9) 包装袋の易カット性

官能評価を行った。三方シール法でヒートシールし製袋した包装用袋を  
10 シール部より縦および横方向に手で切断した時に、容易に手で引き裂ける  
ものを◎、多少劣るが容易に引き裂けるものを○、容易には手で引き裂け  
ないものを△、手で引き裂けないものを×とした。

#### (実施例①-1)

15 融点が  $175^\circ C$ 、重量平均分子量 17 万の L-乳酸系共重合体を 2 軸押  
出機 (スクリュウ径 =  $35\phi$ 、 $L/D = 4.5$  : 東芝機械製 TEM) で溶融  
し、Tダイより  $200^\circ C$  で押出し、未延伸フィルムを得た。

該未延伸フィルムをまずロール延伸機で縦方向に  $75^\circ C$  で 3.4 倍、次  
いでテンター延伸機で横方向に  $85^\circ C$  で 5.5 倍延伸した後、 $155^\circ C$  で  
20 熱固定処理を行い、降温過程で 3% の弛緩処理を行ない  $25\mu m$  のフィル  
ムを得た。尚、本フィルム製膜中は、破断等のトラブルはなく、生産性は  
良好であった。

該フィルムを、殺菌灯 (東芝製殺菌ランプ GL20-A) を露光器 (J  
EA2SS : 日本電子精機製) に装着した紫外線照射処理器で、3 分間紫  
25 外線照射処理をした。紫外線照射処理後のフィルムについて易引き裂き性  
とひねり固定性の官能試験を実施した。紫外線照射処理後のフィルムは、  
あらゆる方向に対して良好な易引き裂き性を持っていた。また、ひねり固  
定性も良好であった。

## (実施例①－２)

紫外線照射処理を１０分間実施した以外は、実施例①－１と同じ方法で延伸フィルムを得た後、紫外線照射処理したフィルムを得た。紫外線照射処理後のフィルムは、あらゆる方向に対して良好な易引き裂き性を持っていた。また、ひねり固定性も良好であった。

## (実施例①－３)

紫外線照射処理を２０分間実施した以外は、実施例①－１と同じ方法で延伸フィルムを得た後、紫外線照射処理したフィルムを得た。紫外線照射処理後のフィルムは、あらゆる方向に対して良好な易引き裂き性を持っていた。また、ひねり固定性も良好であった。

## (実施例①－４および①－５)

実施例①－１の方法において、実施例①－１と同様の方法で得た脂肪族ポリエステル系延伸フィルムを紫外線照射することなく、電子線照射装置に導入し２００ＫＶでそれぞれ１５および２０Ｍｒａｄのエネルギーの電子線を照射することにより、実施例①－４および①－５の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムを得た。これらの実施例で得られたフィルムは、あらゆる方向に対して良好な易引き裂き性を持っていた。また、ひねり固定性も良好であった。

## (比較例①－１)

実施例①－１において紫外線照射処理する前のフィルムについて、易引き裂き性とひねり固定性の官能試験を実施した。横方向は、セロハンフィルムより引き裂きにくく、縦方向には切断することができなかった。また、フィルムをひねると、ひねった状態を維持できなかった。

実施例ならびに比較例で得られたフィルムの評価結果を表１に示す。

表 1

		実施例 ①-1	実施例 ①-2	実施例 ①-3	実施例 ①-4	実施例 ①-5	比較例 ①-1
フィルム 厚さ	$\mu\text{m}$	25	25	25	25	25	25
融点	$^{\circ}\text{C}$	175	175	175	175	175	175
熱処理 温度	$^{\circ}\text{C}$	155	155	155	155	155	155
UV照射 時間	分	3	10	20	—	—	未処理
電子線 照射エネ ルギー	Mrad	—	—	—	15	20	未処理
端裂抵抗	N	15	10	5	13	7	55
易引裂き 性 (横)	—	○	◎	◎	○	◎	△
易引裂き 性 (縦)	—	○	◎	◎	○	◎	×
ひねり 固定性	—	○	◎	◎	○	◎	×

## (実施例②-1)

融点が175 $^{\circ}\text{C}$ 、重量平均分子量17万のL-乳酸系共重合体を2軸押  
 5 出し機（スクリー径=35 $\phi$ 、L/D=45：東芝機械製TEM）で溶  
 融し、Tダイより200 $^{\circ}\text{C}$ で押出し、未延伸フィルムを得た。

該未延伸積層フィルムをまずロール延伸機で縦方向に75 $^{\circ}\text{C}$ で3.4倍、  
 次いでテンター延伸機で横方向に85 $^{\circ}\text{C}$ で5.5倍延伸した後、155 $^{\circ}\text{C}$   
 10 で熱固定処理を行い、降温過程で3%の弛緩処理を行ない25 $\mu\text{m}$ のフィ  
 ルムを得た。尚、本フィルム製膜中は、破断等のトラブルはなく、生産性  
 は良好であった。

該フィルムを、殺菌灯（東芝製殺菌ランプGL20-A）を露光器（JEAS S：日本電子精機製）に装着した紫外線照射処理器で、5分間紫外線照射処理をした。紫外線照射処理後のフィルムについて易引き裂き性とひねり固定性の官能試験を実施した。紫外線照射処理後のフィルムは、あらゆる方向に対して良好な易引き裂き性を持っていた。また、ひねり固定性も良好であった。

（実施例②-2）

紫外線照射処理を10分間実施した以外は、実施例②-1と同じ方法で延伸フィルムを得た後、紫外線照射処理したフィルムを得た。紫外線照射処理後のフィルムは、あらゆる方向に対して良好な易引き裂き性を持っていた。また、ひねり固定性も良好であった。

（実施例②-3）

紫外線照射処理を20分間実施した以外は、実施例②-1と同じ方法で延伸フィルムを得た後、紫外線照射処理したフィルムを得た。紫外線照射処理後のフィルムは、あらゆる方向に対して良好な易引き裂き性を持っていた。また、ひねり固定性も良好であった。

（比較例②-1）

実施例②-1において紫外線照射処理する前のフィルムについて、易引き裂き性とひねり固定性の官能試験を実施した。横方向は、セロハンフィルムより引き裂きにくく、縦方向には切断することができなかった。また、フィルムをひねると、ひねった状態を維持できなかった。

実施例ならびに比較例で得られたフィルムの評価結果を表2に示す。

表 2

		実施例 ②-1	実施例 ②-2	実施例 ②-3	比較例 ②-1
フィルム 厚さ	$\mu\text{m}$	25	25	25	25
融点	$^{\circ}\text{C}$	175	175	175	175
熱処理温度	$^{\circ}\text{C}$	155	155	155	155
UV照射 時間	分	5	10	20	未処理
205nm の 分子吸光係数	—	1650	1850	2050	1450
端裂抵抗	N	15	10	5	55
易引き裂き性 (横)	—	○	◎	◎	△
易引き裂き性 (縦)	—	○	◎	◎	×
ひねり 固定性	—	○	◎	◎	×

## (実施例③-1)

融点が175 $^{\circ}\text{C}$ 、重量平均分子量17万のL-乳酸系共重合体100重量部に対してコハク酸/ブタンジオール/ポリカプロラクトンよりなる共重合ポリエステル重合体を15重量部の割合で配合した配合物を、2軸押し機（スクリー径=35 $\phi$ 、L/D=45：東芝機械製TEM）で溶融し、Tダイより200 $^{\circ}\text{C}$ で押し出し、未延伸フィルムを得た。該未延伸フィルムをまずロール延伸機で縦方向に75 $^{\circ}\text{C}$ で3.0倍、次いでテンター延伸機で横方向に85 $^{\circ}\text{C}$ で5.0倍延伸した後、155 $^{\circ}\text{C}$ で熱固定処理を行い、降温過程で3%の弛緩処理を行ない25 $\mu\text{m}$ のフィルムを得た。尚、本フィルム製膜中は、破断等のトラブルはなく、生産性は良好であった。

該フィルムを、殺菌灯（東芝製殺菌ランプGL20-A）を露光器（J

E A 2 S S : 日本電子精機製) に装着した紫外線照射処理器で、3 分間紫外線照射処理をすることにより実施例 1 の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムを得た。得られたフィルムの特性を表 3 に示した。

(実施例③- 2)

- 5 実施例③- 1 の方法において、L-乳酸系共重合体 100 重量部に対してコハク酸/ブタンジオール/ポリカプロラク톤よりなる共重合ポリエステル重合体を 10 重量部の割合で配合した以外は、実施例③- 1 と同様の方法により実施例 2 の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムを得た。得られたフィルムの評価結果を表 3 に示した。

- 10 (実施例③- 3 および③- 4)

実施例③- 1 の方法において、紫外線照射時間をそれぞれ 10 分間および 20 分間とする以外は、実施例③- 1 と同様の方法により実施例③- 3 および③- 4 の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムを得た。得られたフィルムの評価結果を表 3 に示した。

- 15 (実施例③- 5 および③- 6)

実施例③- 1 の方法において、実施例③- 1 と同様の方法で得た脂肪族ポリエステル系延伸フィルムを紫外線照射することなく、該フィルムを電子線照射装置に導入し 200 KV でそれぞれ 15 および 20 Mrad の電子線を照射することにより、実施例③- 5 および③- 6 の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルムを得た。得られたフィルムの評価結果を表 3 に示した。

(比較例③- 1)

実施例③- 1 の方法において、コハク酸/ブタンジオール/ポリカプロラク톤よりなる共重合ポリエステル重合体の配合を止める以外は、実施例  
25 ③- 1 と同様の方法により比較例 1 の脂肪族ポリエステル系延伸フィルムを得た。得られたフィルムの評価結果を表 3 に示した。

(比較例③- 2)

実施例③- 1 の方法において、紫外線照射処理を取り止める以外は、実



施例③－１と同様の方法で比較例③－２の脂肪族ポリエステル系延伸フィルムを得た。得られたフィルムの評価結果を表３に示した。

表 3

	エラストマー配合量 (重量部)	活性線の種類と照射量	引き裂きエネルギー (gf・mm/ $\mu$ m)	引き裂き衝撃強度 (j/mm <sup>2</sup> )
実施例③－１	１５	紫外線 ３分	２．５	１．２
実施例③－２	１０	紫外線 ３分	２．０	０．９
実施例③－３	１５	紫外線 １０分	２．０	１．１
実施例③－４	１５	紫外線 ２０分	１．５	１．０
実施例③－５	１５	電子線 １５Mrad	２．５	１．３
実施例③－６	１５	電子線 ２０Mrad	２．０	１．２
比較例③－１	０	紫外線 ３分	２．０	０．３
比較例③－２	１５	照射なし	７．０	１．８

#### ５ (実施例④－１)

融点が１７５℃、重量平均分子量１７万のＬ－乳酸系共重合体を２軸押出し機（スクリー径＝３５mm $\phi$ 、L/D＝４５：東芝機械製TEM）で溶融し、Ｔダイより２００℃で押出し、未延伸フィルムを得た。

該未延伸フィルムをまずロール延伸機で縦方向に７５℃で３．４倍、次いでテンター延伸機で横方向に８５℃で５．５倍延伸した後、１５５℃で熱固定処理を行い、降温過程で３％の弛緩処理を行ない２５ $\mu$ mの基材フィルムを得た。

一方、融点が１５０℃で重量平均分子量１５万のＬ－乳酸系共重合体１００重量部にポリカプロラクトン１０重量部を混合した配合物を、前記し

たと同じ条件で押し出し、前記した方法で得た基材フィルムの上に厚みが  $50\text{ }\mu\text{m}$  となるように押し出しラミネーションを行い、脂肪族ポリエステル系樹脂のヒートシール層を形成した。得られた積層体を三方シール機に導入し三方シールされた包装用袋を得た。

- 5      上記方法で得た包装用袋を電子線照射装置に導入し、 $350\text{KV}$ の加速電圧で $15\text{Mrad}$ の電子線を照射し、易カット性の包装用袋を得た。得られた包装用袋の易カット性評価結果を表4に示した。本実施例で得た包装用袋は易カット性に優れていた。また、生物分解性を有しており環境対応型であり、包装用袋として実用性の高いものであった。

10      (実施例④-2および④-3)

実施例④-1において、電子線照射の照射エネルギーをそれぞれ10および $20\text{Mrad}$ とする以外は、実施例④-1と同様の方法で実施例④-2および④-3の易カット性包装用袋を得た。得られた包装用袋の易カット性評価結果を表4に示した。これらの実施例で得られた包装用袋は実施例④-1で得た包装用袋と同様に実用性の高いものであった。

15      (実施例④-4)

実施例④-1において、電子線照射を取り止め、替わりに殺菌灯（東芝製殺菌ランプGL20-A）を露光器（JEA2SS：日本電子精機製）に装着した紫外線照射処理器で、3分間紫外線照射処理とする以外は、実施例1と同様の方法で実施例④-4の易カット性包装用袋を得た。得られた包装用袋の易カット性評価結果を表4に示した。本実施例で得た包装用袋は実施例④-1で得られた包装用袋と同様に実用性の高いものであった。

20      (実施例④-5および④-6)

- 25      実施例④-4において、紫外線照射処理時間をそれぞれ10および20分間とした以外は、実施例④-4と同様の方法で実施例④-5および④-6の易カット性包装用袋を得た。得られた包装用袋の易カット性評価結果を表4に示した。これらの実施例で得た包装用袋は実施例④-4で得られた包装用袋と同様に実用性の高いものであった。

## (比較例④－１)

実施例④－１において、電子線照射を取り止める以外は、実施例④－１と同様の方法で比較例④－１の包装用袋を得た。得られた包装用袋の易カット性評価結果を表４に示した。本比較例で得た包装用袋は、生物分解性を有しており環境対応型である点は優れているが、易カット性が劣っており、手切れ性が要求される包装用袋としては実用性が低いものであった。

表４

	電子線照射 エネルギー (Mrad)	UV照射時間 (分)	易カット性
実施例④－１	１５	—	◎
実施例④－２	１０	—	○
実施例④－３	２０	—	◎
実施例④－４	—	３	○
実施例④－５	—	１０	◎
実施例④－６	—	２０	◎
比較例④－１	—	—	×

## (実施例⑤－１)

10 融点が１７５℃、重量平均分子量１７万のＬ－乳酸系共重合体を２軸押出し機（スクリー径＝３５mmφ、L/D＝４５：東芝機械製TEM）で熔融し、Tダイより２００℃で押出し、未延伸フィルムを得た。

該未延伸フィルムをまずロール延伸機で縦方向に７５℃で３．４倍、次いでテンター延伸機で横方向に８５℃で５．５倍延伸した後、１５５℃で  
15 熱固定処理を行い、降温過程で３％の弛緩処理を行ない２５μmの基材フィルムを得た。

一方、融点が１５０℃で重量平均分子量１５万のＬ－乳酸系共重合体１

00重量部にポリカプロラクトン10重量部を混合した配合物を、前記したと同じ条件で押し出し、前記した方法で得た基材フィルムに厚みが50  $\mu$ mとなるように押し出しラミネーションを行い、脂肪族ポリエステル系樹脂のヒートシール層を形成した。

- 5 上記方法で得た積層体を電子線照射装置に導入し、350KVの加速電圧で15Mradの電子線を照射した。該方法で作成した電子線照射した積層体を三方シール機に導入し三方シールされた包装用袋を得た。得られた包装用袋の易カット性評価結果を表5に示した。本実施例で得た包装用袋は易カット性に優れていた。また、生物分解性を有しており環境対応型
- 10 であり、包装用袋として実用性の高いものであった。

(実施例⑤-2および⑤-3)

- 実施例⑤-1において、電子線照射の照射エネルギーをそれぞれ10および20Mradとする以外は、実施例⑤-1と同様の方法で実施例⑤-2および⑤-3の易カット性包装用袋を得た。得られた包装用袋の易カッ
- 15 ト性評価結果を表5に示した。これらの実施例で得られた包装用袋は実施例⑤-1で得た包装用袋と同様に実用性の高いものであった。

(実施例⑤-4)

- 実施例⑤-1において、電子線照射を取り止め、代わりに殺菌灯（東芝製殺菌ランプGL20-A）を露光器（JEA2SS：日本電子精機製）
- 20 に装着した紫外線照射処理器で、3分間紫外線照射処理とする以外は、実施例1と同様の方法で実施例⑤-4の易カット性包装用袋を得た。得られた包装用袋の易カット性評価結果を表5に示した。本実施例で得た包装用袋は実施例⑤-1で得られた包装用袋と同様に実用性の高いものであった。

(実施例⑤-5および⑤-6)

- 25 実施例⑤-4において、紫外線照射処理時間をそれぞれ10および20分間とした以外は、実施例⑤-4と同様の方法で実施例⑤-5および⑤-6の易カット性包装用袋を得た。得られた包装用袋の易カット性評価結果を表5に示した。これらの実施例で得た包装用袋は実施例⑤-4で得られ

た包装用袋と同様に実用性の高いものであった。

(比較例⑤－１)

実施例⑤－１において、電子線照射を取り止める以外は、実施例⑤－１と同様の方法で比較例⑤－１の包装用袋を得た。得られた包装用袋の易カット性評価結果を表５に示した。本比較例で得た包装用袋は、生物分解性を有しており環境対応型である点は優れているが、易カット性が劣っており、易カット性が要求される包装用袋としては実用性が低いものであった。

表 5

	電子線照射 エネルギー (Mrad)	UV照射時間 (分)	易カット性
実施例 1	15	—	◎
実施例 2	10	—	○
実施例 3	20	—	◎
実施例 4	—	3	○
実施例 5	—	10	◎
実施例 6	—	20	◎
比較例 1	—	—	×

10 (実施例⑥－１)

乳酸系ポリエステル樹脂層 (A) の原料として融点が 145℃の D-乳酸比率が 10%である L-乳酸系共重合体を用い、乳酸系ポリエステル樹脂層 (B) の原料として融点が 175℃の D-乳酸比率が 1%である L-乳酸系共重合体を用い、両原料を別々の 2 台の押出し機で熔融押出しし、フィードブロックで合流させた後に Tダイより 200℃で押出し、冷却ドラムで急冷して (B/A/B) 構成の厚さ 400 μm の未延伸積層フィルムを得た。

該未延伸積層フィルムをまず縦方向に 75℃で 3.4 倍、次いで横方向に 85℃で 5.5 倍延伸した後、155℃で熱処理を行い、降温過程で 3%

の弛緩処理をあたえて  $25\text{ }\mu\text{m}$  のフィルムを得た。このフィルムの B/A/B 各層の厚み構成比率はそれぞれ 2/21/2 の比率であった。

以上の製膜工程により得られたフィルムは官能試験でどの方向にも容易に切断することができ、またフィルムをひねると、そのままのひねった状態を維持できた。また、本フィルムは製膜及びスリット時にも破断等のトラブルは無く生産性も良好であった。

(実施例⑥-2)

実施例⑥-1 と同じ原料及び方法で B/A/B 各層の厚み構成比率のみ 4/17/4 に変更した  $25\text{ }\mu\text{m}$  のフィルムを得た。該フィルムも実施例⑥-1 よりも少し抵抗のある手切れ性となった以外はひねり固定性も良好であった。

(比較例⑥-1)

実施例⑥-1 と同じ原料及び方法で B/A/B 各層の厚み構成比率のみ 10/5/10 に変更して  $25\text{ }\mu\text{m}$  のフィルムを得た。かくして得られたフィルムは良好な引き裂き性を有せず、またひねり試験においても元に戻り、ひねり固定性は得られなかった。

(比較例⑥-2)

実施例⑥-1 と同じ原料及び方法で熱処理温度のみを  $130^{\circ}\text{C}$  に変更して  $25\text{ }\mu\text{m}$  のフィルムを得た。かくして得られたフィルムは良好な引き裂き性を有せず、またひねり試験においても元に戻り、ひねり固定性は得られなかった。

(比較例⑥-3)

乳酸系ポリエステル樹脂層 (A) の原料としての融点が  $169^{\circ}\text{C}$  の D-乳酸比率が 1.2% である L-乳酸系共重合体を用い、変更した以外は全て実施例⑥-1 と同じ方法、条件、厚み比率で  $25\text{ }\mu\text{m}$  のフィルムを得た。このフィルムは、易引き裂き性は認められず、またフィルムをひねり試験においても元に戻り、ひねり固定性は得られなかった。

実施例⑥-1、⑥-2 ならびに比較例⑥-1～⑥-3 で得られたフィル

ムの評価結果を表 6 に示す。

表 6

		実施例 ⑥-1	実施例 ⑥-2	比較例 ⑥-1	比較例 ⑥-2	比較例 ⑥-3
フィルム 厚み	$\mu\text{m}$	25	25	25	25	25
A 層 厚み	$\mu\text{m}$	21	17	5	21	5
B 層 比率	%	16	32	80	16	80
A 層 樹脂融点	$^{\circ}\text{C}$	145	145	145	145	169
B 層 樹脂融点	$^{\circ}\text{C}$	175	175	175	175	175
熱処理 温度	$^{\circ}\text{C}$	155	155	155	130	155
端裂抵抗	N	5	10	34	31	55
易引き 裂き性	—	◎	○	×	×	×
ひねり 固定性	—	○	○	×	×	×

## 産業上の利用可能性

本発明によって得られた脂肪族ポリエステル系延伸フィルムは、セロハンフィルムの特長である易引き裂き性、ひねり固定性、透明性を有し、かつ脂肪族ポリエステルフィルムの持つ耐熱性、保香性、強韌性を合わせもつ環境対応型の生分解性フィルムであるので、食品、医薬品、電子部品等の包装材料、あるいは粘着テープ素材として好適である。

また、本発明③によって得られた脂肪族ポリエステル系延伸フィルムは、易引き裂き性に優れ、かつ引張り衝撃性が優れているという二律背反の両特性を兼ね備えたセロファンフィルムの特長を有しているので、食品、医薬品、電子部品等の包装材料、あるいは粘着テープ素材として好適である。

また、本発明⑥および⑦の脂肪族ポリエステル系フィルムからなる包装袋は、易カットに優れており、かつ脂肪族ポリエステルフィルムの持つ耐熱性、保香性、強韌性を合わせもつ環境対応型の生分解性フィルムであるので、食品、医薬品、電子部品等の包装用袋として好適である。



## 請求の範囲

1. 縦方向及び横方向の端裂抵抗が22N以下であることを特徴とする易引裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルム。

5

2. 波長205nmにおける分子吸光係数が1500以上であることを特徴とする易引裂き性脂肪族ポリエステルフィルム。

10 3. 引き裂きエネルギーが0.2～5gf・mm/μm、かつ引張り衝撃強度が0.5j/mm<sup>2</sup>以上であることを特徴とする易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルム。

15 4. 脂肪族ポリエステル系延伸フィルムに活性線を照射することにより製造することを特徴とする1～3いずれか1項に記載の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルム。

5. 脂肪族ポリエステル系延伸フィルムの主成分が乳酸系ポリエステル樹脂であることを特徴とする1～4いずれか1項に記載の易引き裂き性脂肪族ポリエステル系延伸フィルム。

20

6. 脂肪族ポリエステル系フィルムに活性線を照射したフィルムを用いて製袋してなることを特徴とする易カット性包装用袋。

25 7. 脂肪族ポリエステル系フィルムを用いて製袋した包装用袋に活性線を照射してなることを特徴とする易カット性包装用袋。

8. 脂肪族ポリエステル系延伸フィルムの主成分が乳酸系ポリエステル樹脂であることを特徴とする6および7いずれか1項に記載の易カット性

## 包装用袋

9. 乳酸系ポリエステル樹脂層 (A) の少なくとも片面に、(A) の融点  $Tm_A$  に対し  $Tm_B \geq Tm_A + 10^\circ\text{C}$  なる融点  $Tm_B$  を有する樹脂 (B) を、フィルム全体の厚さに対して (B) が 5～60% の厚みになるように積層した未延伸積層フィルムを、少なくとも一軸方向に延伸した後、 $Tm_A - 10^\circ\text{C} \leq T_s < Tm_B + 10^\circ\text{C}$  を満たす温度  $T_s$  にて熱処理を行うことを特徴とする乳酸系ポリエステルフィルムの製造方法。
- 5

図 1

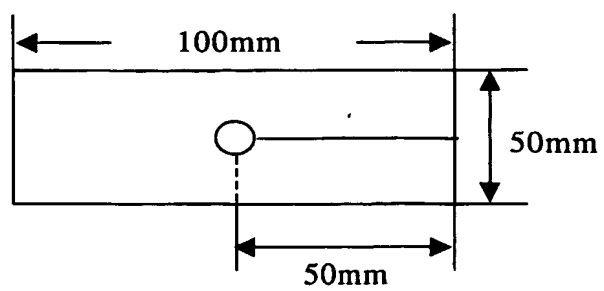
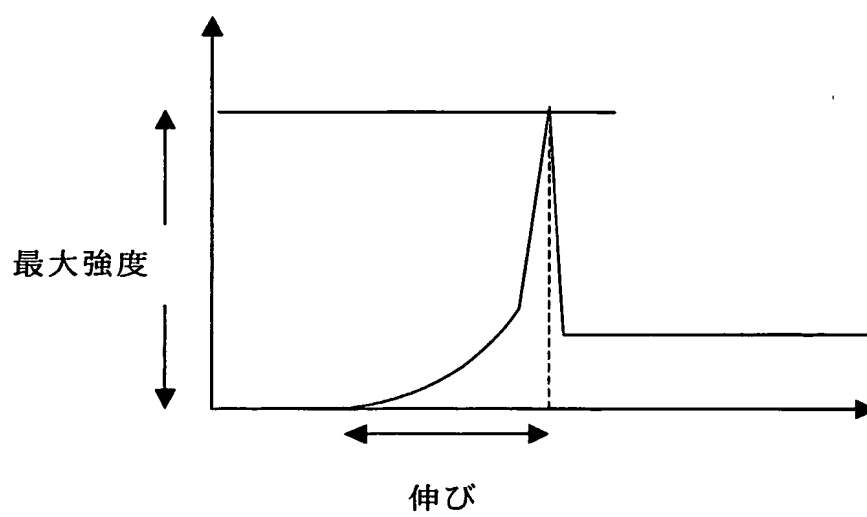


図 2



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Publication No.

PCT/JP03/00014

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER  
Int.Cl<sup>7</sup> C08J5/18//C08L67:00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)  
Int.Cl<sup>7</sup> C08J5/18, C08L67/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched  
Jitsuyo Shinan Koho 1926-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003  
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2003 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
CAS ONLINE

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 2001-191407 A (Mitsubishi Plastics, Inc.), 17 July, 2001 (17.07.01), Claims; page 4, Par. Nos. [0017], [0021]; page 8, comparative example 8 (Family: none)	1 2-9
Y	JP 2001-88264 A (Toyobo Co., Ltd.), 03 April, 2001 (03.04.01), Claims; page 2, Par. No. [0003]; page 8, Par. No. [0066] (Family: none)	1-9
Y	JP 2000-86749 A (Shimadzu Corp.), 28 March, 2000 (28.03.00), Claims; page 2, Par. No. [0007] (Family: none)	1-9

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier document but published on or after the international filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention</p> <p>"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone</p> <p>"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art</p> <p>"&amp;" document member of the same patent family</p>
--	---

Date of the actual completion of the international search  
02 April, 2003 (02.04.03)

Date of mailing of the international search report  
15 April, 2003 (15.04.03)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Publication No.  
PCT/JP03/00014

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2000-86877 A (Shimadzu Corp.), 28 March, 2000 (28.03.00), Claims (Family: none)	1-9
A	JP 10-217243 A (Shimadzu Corp.), 18 August, 1998 (18.08.98), Claims (Family: none)	1-9

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International Application No.

PCT/JP03/00014

**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

There is no unifying novel inventive concepts common among claim 1, claim 2, claim 3, claims 6 and 7, and claim 9. The constitutions of film properties and treatment methods described in these groups of claims are not matters which, at the time of the filing of this application, were considered by persons skilled in the art to be closely relevant. Consequently, there is no relationship among those groups of inventions which involves a common special technical feature in the meaning of Rule 13.2 of the Regulations under the PCT. It cannot hence be said that they are a group of inventions so linked as to form a single general inventive concept.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest** ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08J5/18 // C08L67:00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08J5/18 C08L67/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1926-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2003年
日本国実用新案登録公報	1996-2003年
日本国登録実用新案公報	1994-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

CAS ONLINE

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2001-191407 A (三菱樹脂株式会社) 2001. 07. 17, 特許請求の範囲, 第4頁【0017】, 【0021】, 第8頁比較例8 (ファミリーなし)	1
Y		2-9
Y	JP 2001-88264 A (東洋紡績株式会社) 2001. 04. 03, 特許請求の範囲, 第2頁【0003】, 第8頁【0066】 (ファミリーなし)	1-9
Y	JP 2000-86749 A (株式会社島津製作所) 2000. 03. 28, 特許請求の範囲, 第2頁【0007】 (ファミリーなし)	1-9

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

02.04.03

国際調査報告の発送日

15.04.03

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
郵便番号100-8915  
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

天野 宏樹



4 J 9272

電話番号 03-3581-1101 内線 3456

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 2000-86877 A (株式会社島津製作所) 2000. 03. 28, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-9
A	JP 10-217243 A (株式会社島津製作所) 1998. 0 8. 18, 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-9



## 第Ⅰ欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項 (PCT 17条(2)(a)) の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第Ⅱ欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求項1, 請求項2, 請求項3, 請求項6, 7及び請求項9の間には、共通する統一的で新規な発明概念はない。また、これら各請求項群に記載されているフィルム物性及び処理方法の構成は、本出願時に密接な関連性があるものとして当業者に認識されていた事項ではない。よって、上記各発明群は、PCT規則13.2の特別な技術的特徴を共有する関係にならないので、単一の一般的発明概念を形成するように連関している一群の発明とは言えない。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったので、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。